

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

EP1091PCT-US

ISR-④

(11)Publication number : 08-034964

(43)Date of publication of application : 06.02.1996

(51)Int.Cl.

C09J135/00

A61K 9/70

A61K 9/70

A61K 9/70

(21)Application number : 06-226754

(71)Applicant : SEKISUI CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 21.09.1994

(72)Inventor : KAWAGUCHI SUMIKO  
YAMAYA SEIJI

(30)Priority

Priority number : 06106689 Priority date : 20.05.1994 Priority country : JP

## (54) ACRYLIC TACKY AGENT COMPOSITION

## (57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the composition suitable for mass production of tacky tapes, having excellent tack caused by balanced characteristics of adhesion and cohesion, not rising in viscosity with time, comprising a specific tacky agent, a prescribed solid content and a specific organic solvent.

CONSTITUTION: This composition comprises (A) a tacky agent which is insoluble in water and soluble in acetone and/or tetrahydrofuran, (B) a solid content composed of a polymer containing maleic anhydride and (C) an organic solvent containing acetone and/or tetrahydrofuran. The amount of the component C is  $\geq 30$  pts.wt. based on 100 pts.wt. of the component B and the amount of the component B is  $\geq 5$ wt.% based on the composition. A solid content composed of silicic anhydride is preferably used in the component B.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 17.04.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3550189

[Date of registration] 30.04.2004

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-34964

(43) 公開日 平成8年(1996)2月6日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 J 135/00	J D B			
A 6 1 K 9/70	3 3 3			
	3 3 5			
	3 6 3			

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願平6-226754	(71) 出願人	000002174 積水化学工業株式会社 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号
(22) 出願日	平成6年(1994)9月21日	(72) 発明者	川口 須美子 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内
(31) 優先権主張番号	特願平6-106689	(72) 発明者	山家 誠司 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内
(32) 優先日	平6(1994)5月20日		
(33) 優先権主張国	日本 (J P)		

(54) 【発明の名称】 粘着剤組成物

(57) 【要約】

【目的】粘着力と凝集力のバランス性能により貼付性が優れると共に、溶液粘度の経時的変化のない粘着剤組成物を提供する。

【構成】水不溶性であってアセトン及び／又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤と、無水マレイン酸を含有する重合体からなる固形分、ならびにアセトン及び／又はテトラヒドロフランを含有する有機溶剤から構成される。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】水不溶性であってアセトン及び／又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤と、無水マレイン酸を含有する重合体からなる固形分、ならびにアセトン及び／又はテトラヒドロフランを含有する有機溶剤から構成される粘着剤組成物であって、アセトン及び／又はテトラヒドロフランが上記固形分100重量部に対して30重量部以上含有され、かつ上記固形分が粘着剤組成物中5重量%以上であることを特徴とする粘着剤組成物。

【請求項2】水不溶性であってアセトン及び／又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤と、無水珪酸からなる固形分、ならびにアセトン及び／又はテトラヒドロフランを含有する有機溶剤から構成される粘着剤組成物であって、アセトン及び／又はテトラヒドロフランが上記固形分100重量部に対して30重量部以上含有され、かつ上記固形分が粘着剤組成物中5重量%以上であることを特徴とする粘着剤組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は粘着剤組成物に関する。

## 【0002】

【従来の技術】一般に、粘着組成物及びそれを用いた粘着テープに要求される条件としては、(1)所定の時間、適当な粘着力で皮膚等に確実に密着すること、

(2)粘着テープを剥離する際に糊残りや糸引きが起らないこと、(3)特殊な設備を必要とせずに容易に製造できること等が挙げられる。

【0003】従来、粘着テープにおいて、適当な凝集力を付与するために、粘着剤を架橋する方法が用いられている。架橋方法としては、例えば、粘着剤自体を架橋剤等で微架橋する方法；支持体等に粘着剤層を形成した後、金属イオン架橋、ウレタン架橋、エポキシ架橋、メラミン架橋を行う方法；支持体等に粘着剤層を形成した後、過酸化物質又は電子線照射によりラジカル反応を起こして架橋する方法などが挙げられる。しかしながら、このような架橋方法では、得られた粘着剤層の凝集力は向上する反面、粘着力が低下して貼付性が悪くなるという問題点があった。

【0004】上記以外に、粘着剤層の凝集力を向上させる方法として、例えば、水溶性高分子及びメトキシエチレンー無水マレイン酸共重合体の第一級アルコールモノエステルからなる粘着剤を使用した経皮吸収貼付剤が提案されている(特開昭63-135328号公報)。しかしながら、この方法では、粘着剤層の保形性を高めることはできるが、粘着剤層の粘着力が劣る上に凝集力が不足して剥離する際にべとつきや糊残りを生じるといった問題点があった。

【0005】さらに、上記水溶性高分子の代わりに、アクリル系等の非水溶性粘着剤を用いると粘着性や凝集性を改善できるが、粘着剤の一般的な溶剤である酢酸エチ

ルの溶液中では、メトキシエチレンー無水マレイン酸共重合体が経時的に増粘して、粘着テープ等を大量生産する際に粘着剤層の厚み精度が悪くなるという問題点があった。

【0006】また、粘着剤層が、粘着基剤、可塑化剤、無水ケイ酸及び薬物からなる貼付剤が開示されている(特開平3-291218号公報)。しかしながら、この貼付剤は粘着剤層の凝集性を高めることはできるが、この粘着剤は酢酸エチル等の溶剤中で無水ケイ酸が経時的に増粘することが知られており、大量生産の際には粘着剤層の厚み精度のばらつきが大きくなるという問題点があった。

## 【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記欠点に鑑みてなされたものであって、その目的とするところは、粘着力と凝集力のバランス性能により貼付性が優れると共に、溶液粘度の経時変化のない粘着剤組成物を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】

【0009】第1発明の粘着剤組成物は、水不溶性であってアセトン及び／又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤と無水マレイン酸を含有する重合体からなる固形分、ならびにアセトン及び／又はテトラヒドロフランを含有する有機溶剤から構成される。

【0010】上記水不溶性であってアセトン及び／又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤としては、例えば、(メタ)アクリル系粘着剤、ゴム系粘着剤、シリコン系粘着剤が挙げられるが、(メタ)アクリル系粘着剤が好ましい。

【0011】上記(メタ)アクリル系粘着剤としては、例えば、(メタ)アクリル酸アルキエステルを主体とする重合体が好適に使用されるが、(メタ)アクリル酸アルキエステルと共重合可能な官能性モノマー、多官能性モノマー、ビニル化合物等との共重合体であってもよい。

【0012】上記(メタ)アクリル酸アルキエステルとしては、アルキル基の炭素数が少なくなると凝集力は向上するが粘着力が低下し、多くなると粘着力は向上するが凝集力が低下するので、炭素数1~18のものが好ましく、例えば、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル、(メタ)アクリル酸ブチル、(メタ)アクリル酸イソブチル、(メタ)アクリル酸ヘキシル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシル、(メタ)アクリル酸オクチル、(メタ)アクリル酸イソオクチル、(メタ)アクリル酸デシル、(メタ)アクリル酸イソデシル、(メタ)アクリル酸ドデシル、(メタ)アクリル酸ラウリル、(メタ)アクリル酸ステアリル等が挙げられ、これらは単独で使用されても二種以上が併用されてもよい。

【0013】上記官能性モノマーとしては、水酸基を有するモノマー、カルボキシル基を有するモノマー、アミド基を有するモノマー、アミノ基を有するモノマーなどが挙げられる。

【0014】上記水酸基を有するモノマーとしては、例えば、(メタ)アクリル酸-2-ヒドロキシエチル、(メタ)アクリル酸ヒドロキシプロピル等の(メタ)アクリル酸ヒドロキシアルキル等が好適に使用される。

【0015】また、上記カルボキシル基を有するモノマーとしては、例えば、(メタ)アクリル酸などの $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸；マレイン酸ブチルなどのマレイン酸モノアルキルエステル；(無水)マレイン酸、フマル酸、クロトン酸等が好適に使用される。

【0016】アミド基を有するモノマーとしては、例えば、アクリルアミド、ジメチルアクリルアミド、ジエチルアクリルアミドなどのアルキル(メタ)アクリルアミド；ブトキシメチルアクリルアミド、エトキシメチルアクリルアミドなどのアルキルエーテルメチロール(メタ)アクリルアミド；ジアセトンアクリルアミド等が好適に使用される。

【0017】アミノ基を有するモノマーとしては、例えば、ジメチルアミノエチルアクリレート等が好適に使用される。

【0018】上記多官能性モノマーとしては、例えば、1, 6-ヘキサングリコールジメタクリレート、テトラエチレングリコールジアクリレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、ジビニルベンゼン、ジビニルトルエン、ジアリルフタレート等が挙げられる。

【0019】上記ビニル化合物としては、酢酸ビニル、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、N-ビニル-2-ピロリドン、塩化ビニル、アクリロニトリル、エチレン、プロピレン、ブタジエン等が挙げられ、これらが共重合されてもよい。

【0020】上記(メタ)アクリル酸アルキルエステルを主体とする(共)重合体は、通常、重合開始剤の存在下で上述のモノマーを配合して溶液重合を行うことにより調製される。溶液重合を行う場合は、所定量の各種モノマーに酢酸エチル又はその他の重合溶媒を加え、攪拌装置及び冷却還流装置を備えた反応器中で、アゾビス系、過酸化系等の重合開始剤の存在下、窒素雰囲気中で70~90℃、8~40時間反応させればよい。また、モノマーは一括投入又は分割投入のいずれの方法でもよい。

【0021】上記アゾビス系重合開始剤としては、2, 2'-アゾビス-イソブチロニトリル、1, 1'-アゾビス(シクロヘキサン-1-カルボニトリル)、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)等が挙げられ、過酸化系重合開始剤としては、過酸化ラウロイル、過酸化ベンゾイル、ジ(tert-ブチル)パーオキサイド等が挙げられる。

【0022】上記(メタ)アクリル系粘着剤には、必要に応じて、粘着付与剤、可塑剤等が添加されてもよい。粘着付与剤としては、例えば、ロジン、水添ロジン、不均化ロジン、ロジンエステル等のロジン系樹脂； $\alpha$ -ピネン、 $\beta$ -ピネン等のテルペン系樹脂；テルペンフェノール樹脂；石油系樹脂；アルキルフェノール樹脂；キシレン樹脂；クマロン樹脂；クマロン-インデン樹脂などが挙げられる。

【0023】上記可塑剤としては、粘着剤層を可塑化できるものであれば、特に限定されず、例えば、オクタン酸セチル、ラウリン酸ヘキシル、ミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸ブチル、ステアリン酸オクチル、ヒドロキシステアリン酸オクチル、オレイン酸エチル、オレイン酸デシル、乳酸ミリスチル等の一価アルコール脂肪酸エステル；アジピン酸ジオクチル、セバシン酸ジエチル、セバシン酸ジオクチル、コハク酸ジオクチル二塩基酸エステル；ジカプリン酸プロピレングリコール、トリオクタン酸グリセリル、トリ(オクタン酸/デカン酸)グリセリル、中鎖脂肪酸トリグリセリドなどの多価アルコール脂肪酸エステル及びこれらの脂肪酸エステルに相当する脂肪酸；グリセリン、ジグリセリン等の多価アルコール；炭素数4以上のアルキレングリコール；ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等のポリアルキレングリコール；アリールアルキルアルコール；トリアセチン；液状多糖類；炭素数12以上のアルキルトリメチルアンモニウムクロイド等の液状カチオン界面活性剤；ポリオキシエチレンアルキルエーテル又はエステル、脂肪酸ジエタノールアミド、ソルビタンアルキルエステル、ソルビタンポリオキシエチレンアルキルエステル等の非イオン界面活性剤；ジメチルベタイン等の両性界面活性剤；液状アミノ酸などが挙げられる。これらの中で、特に、ミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、セバシン酸ジエチル、中鎖脂肪酸トリグリセリド等の脂肪酸エステル、ポリエチレングリコール及びトリアセチン等の使用が好ましい。

【0024】上記可塑剤の使用量は、多くなると凝集力及び粘着力が低下するので、粘着剤組成物中50重量%以下が好ましく、より好ましくは40重量%以下である。

【0025】上記ゴム系粘着剤はゴム弾性体を主体とするのが好ましく、ゴム弾性体としては、例えば、シス-1, 4-イソプレン(天然ゴム)、スチレン-イソプレ-スチレンブロック共重合体、ポリイソプレン、ポリブテン、ポリイソブチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体等が挙げられる。

【0026】上記ゴム系粘着剤には、必要に応じて、粘着付与剤、軟化剤、充填剤、老化防止剤等が添加されてもよい。

【0027】上記粘着付与剤としては、上述の粘着付与

剤が使用可能であり、粘着付与剤の使用量は、ゴム系粘着剤100重量部に対して20～200重量部が好ましい。

【0028】上記軟化剤としては、例えば、プロセスオイル、パーム油、綿実油、ヤシ油、ヒマシ油等のオイル；ポリブテン、液状イソブチレン、液状ポリアクリレート、蜜蝋、カルナバロウ、ラノリン等が挙げられる。また、上記充填剤としては酸化チタン等が挙げられ、上記老化防止剤としてはブチルヒドロキシトルエン等が挙げられる。

【0029】上記シリコン系粘着剤としては、ポリジメチルシロキサン等を主成分とするものが好ましい。

【0030】上記無水マレイン酸を含有する重合体としては、無水マレイン酸を含有するものであれば特に限定されず、例えば、メトキシエチレン、エトキシエチレン等のビニルエーテルと無水マレイン酸との共重合体；

(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル等の(メタ)アクリル酸アルキエステルの無水マレイン酸との共重合体；ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィンと無水マレイン酸との共重合体；ポリブタジエン、ポリイソブレン、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体等のゴム系ポリマーの無水マレイン酸付加物等が挙げられ、特に、メトキシエチレンと無水マレイン酸との共重合体、スチレンと無水マレイン酸との共重合体、ポリイソブレンの無水マレイン酸付加物等が好適に使用される。

【0031】上記粘着剤組成物において、無水マレイン酸を含有する重合体の量が、少なくなると粘着剤の凝集力向上効果が小さくなり、多くなると粘着力が低下するので、粘着剤組成物中0.01～20重量%が好ましく、より好ましくは0.1～5重量%である。

【0032】上記メトキシエチレンと無水マレイン酸との重合体の市販品としては、GAF社製「GANTREZ AN-119」（固有粘度0.1～0.5）、「GANTREZ AN-139」（固有粘度1.0～1.4）、「GANTREZ AN-149」（固有粘度1.5～2.0）、「GANTREZ AN-169」（固有粘度2.6～3.5）、「GANTREZ AN-179」（固有粘度3.5～4.5）等が挙げられ、「AN-119」及び「AN-169」が好ましい。

【0033】上記粘着剤組成物において、有機溶剤中に含有されるアセトン及びテトラヒドロフランは、それぞれ単独で使用されても両者が混合して使用されてもよく、その使用量は、少なくなると粘着剤組成物の経時的粘度変化を抑制する効果がなく、多くなると粘着剤組成物の固形分濃度が低くなり過ぎて塗工し難くなるので、粘着剤組成物の固形分100重量部に対して30重量部以上に制限される。上記有機溶剤中の他の溶剤としては、例えば、アクリル系粘着剤の重合溶媒である酢酸エチルが挙げられる。

【0034】上記粘着剤組成物において、アセトン及び/又はテトラヒドロフランの量が多くなると固形分濃度が低くなり過ぎて塗工が困難となり乾燥に時間を要するので、上記粘着剤及び無水マレイン酸を含有する重合体からなる固形分の濃度は、5重量%以上に制限される。

【0035】上記粘着剤組成物に薬物を含有させ、従来公知の粘着テープの製造方法によって支持体に塗工、乾燥して粘着剤層を形成することにより、経皮吸収製剤が得られる。粘着剤組成物の塗工法としては、溶剤塗工法、ホットメルト塗工法、エマルジョン塗工法等が使用可能である。

【0036】上記粘着剤層の厚さは、薄くなると粘着力が低下するので、10～100 $\mu$ mが好ましい。

【0037】上記薬物としては、以下のものが挙げられる。アセトアミノフェノン、フェナセチン、メフェナム酸、ジクロフェナックナトリウム、フルフェナム酸、アスピリン、サリチル酸ナトリウム、アミノピリン、アルクロフェナック、イブプロフェン、ナプロキセン、フルビプロフェン、ケトプロフェン、アンフェナックナトリウム、メビリゾール、インドメタシン、ベンタゾシン、ピロキシカム等の解熱鎮痛消炎剤；ヒドロコルチゾン、トリアムシノロン、デキサメタゾン、ベタメタゾン、プレドニゾロン等のステロイド系抗炎症剤。

【0038】塩酸ジルチアゼム、四硝酸ペンタエリスリトール、硝酸イソソルビド、トラジビル、ニコランジル、ニトログリセリン、乳酸プレニラミン、モルシドミン、亜硝酸アミル、塩酸トラゾリン、ニフェジピン等の血管拡張剤；塩酸プロカインアミド、塩酸リドカイン、塩酸プロプラノロール、塩酸アルブテロール、アテノロール、ナドロール、酒石酸メトプロロール、アジマリン、ジソピラミド、塩酸メキシレチン等の不整脈用剤；塩酸エカラジン、インダバミド、塩酸クロニジン、塩酸ブニトロロール、塩酸ラベタロール、カプトプリル、酢酸グアナベンズ、メブタメート、硫酸ベタニジン等の血圧降下剤。

【0039】クエン酸カルベタベンタン、クロベラスチン、タンニン酸オキセラジン、塩酸クロブチノール、塩酸クロフェダノール、塩酸ノスカピン、塩酸エフェドリン、塩酸イソプロテレノール、塩酸クロルブレンナリン、塩酸メトキシフェナミン、塩酸プロカテロール、塩酸ツロブテロール、塩酸クレンブテロール、フマル酸ケトチフェン等の鎮咳去痰剤。

【0040】シクロフォスファミド、フルオロウラシル、デガフル、マイトマイシンC、塩酸プロカルバジン、ドキシフルリジン、ラニムスチン等の抗悪性腫瘍剤；アミノ安息香酸エチル、塩酸テトラカイン、塩酸プロカイン、塩酸ジブカイン、塩酸オキシプロカイン、塩酸プロビトカイン等の局所麻酔剤。

【0041】プロビルチオウラシル、チアマゾール、酢酸メテロノン、エストラジオール、エストリオール、ブ

ロゲステロン等のホルモン剤；塩酸ジフェニヒドラミン、マレイン酸クロルフェニラミン、プロメタジン、塩酸シプロヘプタジン、塩酸ジフェニルピラルリンの等の抗ヒスタミン剤。

【0042】ワルファリンカリウム、塩酸チクロピジン等の血液凝固阻止剤；臭化メチルアトロピン、スコポラミン等の鎮痙剤；チオペンタールナトリウム、ペントバルビタールナトリウム等の全身麻酔剤；プロムワレニル尿素、アモバルビタール、フェノバルビタール等の催眠・鎮痛剤；フェニトインナトリウム等の抗癲癇剤。

【0043】塩酸メタンフェタミン等の興奮剤・覚醒剤；塩酸ジフェンドール、メシル酸ベタヒスチン等の鎮量剤；塩酸クロルプロマジン、チオリダジン、メプロバメート、塩酸イミプラミン、クロルジアゼポキシド、ジアゼパム等の精神神経用剤；塩酸スキサメトニウム、塩酸エベリゾン等の骨格筋弛緩剤；臭化ネオスチグミン、塩化ベタネコール等の自律神経用剤；塩酸アマンタジン等の抗パーキンソン剤。

【0044】ヒドロフルメチアジド、イソソルビド、フロセミド等の利尿剤；塩酸フェニレフリン等の血管収縮剤；塩酸ロベリン、ジモルホラミン、塩酸ナロキソン等の呼吸促進剤；臭化グリコピロニウム、プログルミド、塩酸セトラキサート、シメチジン、スピゾフロンの消化性潰瘍治療剤；ウルソデスオキシコール酸、オサルミド等の利胆剤；ヘキサミン、スバルティン、ジノプロスト、塩酸リトドリン等の泌尿生殖器及び肛門用剤。

【0045】サリチル酸、シクロピロクスオラミン、塩酸クロコナゾール等の寄生性皮膚疾患用剤；尿素等の皮膚軟化剤；カルシトリオール、塩酸チアミン、リン酸リボフラビンナトリウム、塩酸ピリドキシン、ニコチン酸アミド、パンテノール、アスコルビン酸等のビタミン剤；塩化カルシウム、ヨウ化カリウム、ヨウ化ナトリウム等の無機質製剤。

【0046】エタンシラート等の止血剤；チオプロニン等の肝臓疾患用剤；シアナミド等の習慣性中毒用剤；コルヒチン、プロベネシド、スルフィンピラゾン等の通風治療剤；トルブタミド、クロルプロバミド、グリミジンナトリウム、グリブゾール、塩酸ブホルミン、インスリン等の糖尿病用剤。

【0047】ベンジルペニシリンカリウム、プロピシリンカリウム、クロキサシリンナトリウム、アンピシリンナトリウム、塩酸バカンピリシン、カルペニシリンナトリウム、セファロリジン、セフォキシチンナトリウム、エリスロマイシン、クロラムフェニコール、テトラサイクリン、硫酸カナマイシン、サイクロセリン等の抗生物質；イソシアニド、ピラジナミド、エチオナミド等の化学療法剤；塩酸モルヒネ、リン酸コデイン、塩酸コカイン、塩酸ベチジン等の麻薬。

【0048】上記薬物の添加量は、薬物の種類、テープ製剤の使用目的により異なるが、少なくなると薬物の高

い放出性が得られず、多くなると粘着剤層の凝集力や粘着力が低下するので、通常、粘着剤組成物中0.01～50重量%が好ましい。但し、薬物が粘着剤層中で過飽和状態で存在したり、結晶が析出した状態で存在していても特に支障はない。また、薬物を経皮吸収促進剤と共にカプセル化したり、薬物貯蔵層を設けてもよい。

【0049】上記支持体としては、柔軟性を有するものが好ましく、さらに粘着剤層に薬物やその他の添加物を含有する場合は、不透過性や難透過性のものが好ましい。このような支持体としては、例えば、酢酸セルロース、エチルセルロース、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、酢酸ビニル-塩化ビニル共重合体、エチレン-メチルアクリレート共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-酢酸ビニル-酸化炭素共重合体、ポリ塩化ビニリデン、ポリウレタン、ナイロン、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート等の樹脂フィルム；アルミニウムシートが挙げられ、これらの単層シート、2種以上の積層体が用いられる。また、上記樹脂フィルム又はアルミニウムシートと織布又は不織布との積層体であってもよい。

【0050】上記支持体の粘着剤層形成面には、必要に応じて、コロナ放電処理、薬品酸化処理、オゾン処理などの表面処理が施されていてもよい。

【0051】次に、本発明2の粘着剤組成物について説明する。本発明2の粘着剤組成物は、水不溶性であってアセトン及び/又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤と無水珪酸からなる固形分、ならびに有機溶剤中に含有されるアセトン及び/又はテトラヒドロフランからなる。

【0052】上記水不溶性であってアセトン及び/又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤としては、本発明で使用されるアクリル系粘着剤、ゴム系粘着剤、シリコン系粘着剤が好適に使用される。

【0053】上記無水珪酸としては、主として親水性無水珪酸が使用される。上記粘着剤組成物中、無水珪酸の使用量は、粘着剤の成分及びその組成比によって大きく影響を受けるので、一般的には、少なくなると粘着剤の凝集力向上効果が低減し、多くなると粘着剤の凝集力は向上するが粘着力が低下するので、粘着剤組成物中1～20重量%が好ましく、より好ましくは3～15重量%である。

【0054】上記粘着剤組成物中、上記アセトン及びテトラヒドロフランは、それぞれ単独で使用されても両者が混合されて使用されてもよく、その使用量は、粘着剤の種類や無水珪酸の使用量によって異なるが、粘着剤組成物の固形分100重量部に対して30重量部以上に限定される。上記有機溶剤中の他の溶剤としては、例えば、アクリル系粘着剤の重合溶媒である酢酸エチルが挙げられる。

【0055】上記粘着剤組成物において、アセトン及び/又はテトラヒドロフランの量が多くなると固形分が低

くなり過ぎ塗工が困難となり乾燥に時間を要するので、粘着剤と無水珪酸からなる固形分の濃度は、5重量%以上に制限される。

【0056】上記粘着剤組成物には、必要に応じて薬物、その他添加剤が含有されてもよい。

【0057】上記粘着剤組成物を使用して、本発明と同様な方法によって支持体上に粘着剤層を設けることにより、経皮吸収製剤が得られる。上記支持体としては、本発明で使用される支持体が挙げられる。

【0058】

【実施例】次に、本発明の実施例を説明する。

(実施例1)

#### アクリル系粘着剤(1)の合成

アクリル酸2-エチルヘキシル302g(65モル%)及びN-ビニル-2-ピロリドン98g(35モル%)を攪拌装置および冷却装置付きセパラブルフラスコに仕込み、さらに酢酸エチル400gを加えて、モノマー濃度50重量%に調整した後、この溶液を窒素雰囲気下で80℃に昇温し、過酸化ラウロイル2gをシクロヘキサン100gに溶解した溶液及び酢酸エチル243gを少しずつ添加しながら、12時間重合反応を行って、固形分35重量%、粘度 $1.5 \times 10^4$  cpsのアクリル系粘着剤(1)の酢酸エチル溶液を得た。

【0059】上記アクリル系粘着剤(1)溶液に、無水マレイン酸の重合体として「GANTREZ AN-119」を固形分中の濃度が2重量%となるように加え、さらにアセトン在全固形分100重量部に対して50重量部加え、固形分濃度30重量%の粘着剤組成物を得た。

【0060】(実施例2)アセトン在全固形分100重量部に対して200重量部加えたこと以外は、実施例1と同様にして、固形分濃度20重量%の粘着剤組成物を得た。

【0061】(比較例1)アセトンに代えて酢酸エチルを加えたこと以外は、実施例1と同様にして、固形分濃度30重量%の粘着剤組成物を得た。

【0062】(実施例3)

#### ゴム系粘着剤の調製

スチレン-イソプレン-スチレン・ブロック共重合体

(シェル化学社製「カリフレックスTR1107」)100重量部、粘着付与剤として脂環族水素添加石油樹脂(荒川化学社製「アルコン-P90」)140重量部及び軟化剤としてポリブテン(日石化学社製「HV-300」)25重量部を、酢酸エチル/シクロヘキサン混合溶媒(重量比1:1)490重量部に溶解させて固形分濃度35重量%のゴム系粘着剤溶液を得た。上記ゴム系粘着剤溶液に、無水マレイン酸の重合体として「GANTREZ AN-169」を固形分中の濃度が1重量%となるように加え、さらにアセトン在全固形分100重量部に対して150重量部加え、固形分濃度23重量%の粘着剤組成物を得た。

【0063】(実施例4)アセトン在全固形分100重量部に対して1400重量部加えたこと以外は、実施例3と同様にして、固形分濃度6重量%の粘着剤組成物を得た。

【0064】(比較例2)アセトンを全く加えなかったこと以外は、実施例3と同様にして、固形分濃度23重量%の粘着剤組成物を得た。

【0065】(比較例3)アセトン在全固形分100重量部に対して3000重量部加えたこと以外は、実施例3と同様にして、固形分濃度3重量%の粘着剤組成物を得た。

【0066】上記実施例及び比較例で得られた粘着剤組成物につき、以下の測定、評価を行い、その結果を表1に示した。

#### (1) 粘度測定

粘着組成物の調製直後及び調製から2週間後における粘度を、B型粘度計を用いて $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ で測定した。

#### (2) 塗工性評価

調製直後及び調製2週間後を経過した粘着組成物を使用して、シリコン処理した厚さ35 $\mu\text{m}$ のポリエチレンテフタレートフィルム上に塗工、乾燥して、乾燥後の厚さ80 $\mu\text{m}$ の粘着剤層を形成した後、目視により均一な粘着剤層が得られたかどうかを観察した。

○：均一な粘着剤層が形成された。

×：均一な粘着剤層が形成されなかった。

【0067】

【表1】

		粘着剤の 種類	固形分 (重量%)	MA (重量%)	アセトン (重量部)	粘度(cps)		塗工性	
						直後	2週間後	直後	2週間後
実 施 例	1	アクリル系 (1)	30	2	50	2080	2800	○	○
	2	同 上	20	2	200	740	890	○	○
	3	ゴム系	23	1	150	1400	1770	○	○
	4	同 上	6	1	1400	540	620	○	○
比 較 例	1	アクリル系 (1)	30	2	0	5150	20400	○	×
	2	ゴム系	23	1	0	3500	10800	○	×
	3	同 上	3	1	3000	190	220	×	—

MA: 無水マレイン酸重合体、直後: 調製直後

【0068】(実施例5) 実施例1と同様にして得られたアクリル系粘着剤(1)の酢酸エチル溶液に、無水マレイン酸の重合体として「GANTREZ AN-119」を固形分中の濃度が2重量%となるように加え、さらにアセトンに代えてテトラヒドロフラン(以下THFという)を全固形分100重量部に対して50重量部加え、固形分濃度30重量%の粘着剤組成物を得た。

【0069】(実施例6) THFを全固形分100重量部に対して200重量部加えたこと以外は、実施例5と同様にして、固形分濃度20重量%の粘着剤組成物を得た。

【0070】(実施例7) 実施例3と同様にして得られたゴム系粘着剤溶液に、無水マレイン酸の重合体として「GANTREZ AN-169」を固形分中の濃度が1重量%となるように加え、さらにTHFを全固形分1

00重量部に対して150重量部加え、固形分濃度23重量%の粘着剤溶液を得た。

【0071】(実施例8) THFを全固形分100重量部に対して1400重量部加えたこと以外は、実施例7と同様にして、固形分濃度6重量%の粘着剤組成物を得た。

【0072】(比較例4) THFを全固形分100重量部に対して3000重量部加えたこと以外は、実施例7と同様にして、固形分濃度3重量%の粘着剤溶液を得た。

【0073】上記実施例5～8及び比較例4で得られた粘着剤組成物につき、実施例1と同様な粘度測定及び塗工性評価を行い、その結果を表2に示した。

【0074】

【表2】

		粘着剤の 種類	固形分 (重量%)	MA (重量%)	THF (重量部)	粘度(cps)		塗工性	
						直後	2週間後	直後	2週間後
実 施 例	5	アクリル系 (1)	30	2	50	2450	3300	○	○
	6	同 上	20	2	200	820	990	○	○
	7	ゴム系	23	1	150	1750	2210	○	○
	8	同 上	6	1	1400	720	800	○	○
比較4	同 上	3	1	3000	250	280	×	—	—

MA: 無水マレイン酸重合体、THF: テトラヒドロフラン  
直後: 調製直後

【0075】(実施例9) 実施例1と同様にして得られたアクリル系粘着剤(1)の酢酸エチル溶液に、無水珪酸を固形分中の濃度が5重量%となるように加え、さらにアセトンを固形分濃度100重量部に対して50重量部加え、固形分濃度30重量%の粘着剤組成物を得た。

【0076】(実施例10) アセトンを固形分100重量部に対して200重量部加えたこと以外は、実施例11と同様にして、固形分濃度20重量%の粘着剤組成物を得た。

【0077】(実施例11) アセトン及びTHFをそれぞ

れを固形分100重量部に対して100重量部加えたこと以外は、実施例11と同様にして、固形分濃度20重量%の粘着剤組成物を得た。

【0078】(比較例5) アセトンに代えて酢酸エチルを加えたこと以外は、実施例11と同様にして、固形分濃度30重量%の粘着剤組成物を得た。

【0079】(実施例12) 実施例3と同様にして得られたゴム系粘着剤溶液に、無水珪酸を固形分中の濃度が3重量%となるように加え、さらにTHFを固形分100重量部に対して150重量部加えて、固形分濃度23重

量%の粘着剤組成物を得た。

【0080】(実施例13) 実施例3と同様にして得られたゴム系粘着剤溶液に、無水珪酸を固形分中の濃度が3重量%となるように加え、さらにTHFを固形分100重量部に対して1400重量部加え、固形分濃度6重量%の粘着剤組成物を得た。

【0081】(比較例6) 実施例3と同様にして得られたゴム系粘着剤溶液に、無水珪酸を固形分中の濃度が3重量%となるように加え、さらにTHFに代えて酢酸エチル：シクロヘキサノン(1：1)混合液を加えて、固形分濃度23重量%の粘着剤組成物を得た。

【0082】(比較例7) 実施例3と同様にして得られたゴム系粘着剤溶液に、無水珪酸を固形分中の濃度が3重量%となるように加え、さらにTHFを固形分100重量部に対して3000重量部加え、固形分濃度3重量%の粘着剤組成物を得た。

【0083】(実施例14)

#### アクリル系粘着剤(2)の合成

アクリル酸エチル200g、アクリル酸オクチル180g、N-ビニル-2-ピリドン20gを攪拌装置および冷却装置付きセバラブルフラスコに仕込み、さらに酢酸エチル400gを加えて、モノマー濃度50重量%に調

整した後、この溶液を窒素雰囲気下で80℃に昇温し、過酸化ラウロイル4gをシクロヘキサノン100gに溶解した溶液及び酢酸エチル243gを少しずつ添加しながら、12時間重合反応を行って、固形分35重量%、粘度 $8 \times 10^4$  cpsのアクリル系粘着剤の酢酸エチル溶液を得た。得られたアクリル系粘着剤の酢酸エチル溶液に、無水珪酸及びバルミチン酸イソプロピル(可塑剤)を固形分中の濃度がそれぞれ7及び30重量%となるように加え、さらにアセトンを固形分100重量部に対して80重量部加え、固形分濃度24重量%の粘着剤組成物を得た。

【0084】(比較例8) 実施例14で得られたアクリル系粘着剤(2)に、無水珪酸を固形分中の濃度が7重量%となるように加え、さらにバルミチン酸イソプロピル(可塑剤)を固形分100重量部に対して30重量部加え、固形分濃度24重量%の粘着剤組成物を得た。

【0085】上記実施例9～14及び比較例5～8で得られた粘着剤組成物につき、実施例1と同様な粘度測定及び塗工性評価を行い、その結果を表3に示した。

【0086】

【表3】

	粘着剤の種類	固形分(重量%)	無水珪酸(重量%)	可塑剤(重量%)	アセトン(重量部)	THF(重量部)	粘度(cps)		塗工性	
							直後	2週間後	直後	2週間後
実施例	9 アクリル系(1)	30	5	0	50	0	7350	9600	○	○
	10 同上	20	5	0	200	0	2340	3200	○	○
	11 同上	20	5	0	100	100	3050	4110	○	○
	12 ゴム系	23	3	0	0	150	2450	3100	○	○
	13 同上	6	3	0	0	1400	880	100	○	○
	14 アクリル系(2)	24	7	30	80	0	3820	5200	○	○
比較例	5 アクリル系(1)	30	5	0	0	0	16500	66100	○	×
	6 ゴム系	23	3	0	0	0	6100	18400	○	×
	7 同上	3	3	0	0	3000	260	290	×	—
	8 アクリル系(2)	24	7	30	0	0	9550	28500	○	×

MA：無水マレイン酸重合体、THF：テトラヒドロフラン  
直後：調製直後

【0087】

【発明の効果】本発明の粘着剤組成物のは、水不溶性であってアセトン又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤、無水マレイン酸を含有する重合体及びアセトン又はテトラヒドロフランからなることにより、粘着力と凝集力のバランス性能により貼付性が優れると共に、経時的な粘度上昇が起こらないので、粘着テープの量産に好適に使用される。

【0088】第2発明の粘着剤組成物は、水不溶性であってアセトン又はテトラヒドロフラン可溶性の粘着剤、無水珪酸ならびにアセトン及びテトラヒドロフランのうち少なくともいずれか1種からなることにより、粘着力と凝集力のバランス性能により貼付性が優れると共に、経時的な粘度上昇が起こらないので、大量生産が容易となる。また、貼付剤として使用する場合には、粘着剤層が柔軟性を保持しながら高い凝集性を示すので、剥離す

る際に粘着剤のはみ出しや糊残りが起こらない。